

MiMethox: Mikrobielle Methanoxidation in Deponieabdeckschichten

Prozessstudie auf einer MBA-Deponie

Sonja Bohn

Technische Universität Darmstadt, Fachgebiet Abfalltechnik

MiMethox: Microbial Methane Oxidation in Landfill Top Covers

Abstract

The EU Landfill Directive (Council Directive 99/31/EC) established that by June 1st 2005 landfills may only accept waste of low biological activity. Such low calorific materials contribute significantly less to the production of landfill gas. Nevertheless, to minimize the emission of greenhouse gases, there is a need of further reducing landfill emissions, specifically methane emission. One of the cost-effective and attractive ways to reduce the methane emission is the use of landfill cover layers containing methane oxidation bacteria, reducing methane to CO₂ in the presence of O₂ ($\text{CH}_4 + 2 \text{O}_2 \Rightarrow \text{CO}_2 + 2 \text{H}_2\text{O} + 883 \text{ kJ/mol}$). In 2007 the project "MiMethox- Microbial Methane Oxidation" sponsored by the BMBF (Federal Ministry for Education and Research) started. One of the work packages attend to a field study on a MBT-landfill (mechanically-biologically pre-treated waste) to monitor and characterize methane oxidation at low gas production landfills. Two test cells with a capillary barrier and different recultivation layers were constructed: a top soil, rich in humus, locally available and a mixture of loamy soil and compost (3:1 Vol-%). For the ongoing measurement campaign continuous logging of temperatures, soil humidity, soil parameters and seepage is done to characterize the methane reduction potential. Underground chambers, attached in the capillary block on the waste body, horizontal gas pipes and mobile surface chambers are installed for analyzing gas samples with regard to methane concentration and methane flux.

Zusammenfassung

Nach Verabschiedung der neuen Abfallablagereungsverordnung (ABABLV, 01.06.2005) dürfen nur noch mechanisch-biologisch vorbehandelte Abfälle (MBA) auf Deponien endgelagert werden, was zukünftig eine niedrige Gasbildungsrate erwarten lässt. Dennoch ist die entstehende Methanmenge nicht unerheblich und eine weites gehende Reduzierung der Deponiegasemissionen ist anzustreben. Die Anwendbarkeit der mikrobiellen Methanoxidation zum kostengünstigen Schwachgasabbau ist bereits seit langem bekannt. Bisher gibt es jedoch noch keine Empfehlungen für den technischen Aufbau von optimierten Deponieabdeckschichten sowie ein anwendungsorientiertes Methodenset zur Quantifizierung der Methanoxidationsleistung. Aus dem Bedürfnis, die

Abfallentsorgung nachhaltiger zu entwickeln, ist das Verbundvorhaben „MiMethox – Mikrobielle Methanoxidation in Deponieabdeckschichten“ entstanden. Es wird im Rahmen der Fördermaßnahme „klimazwei“ vom BMBF mit einer Laufzeit von 2007-2012 gefördert.

Das hier vorgestellte Arbeitspaket beschäftigt sich mit einer Feldstudie auf einer MBA-Deponie. Auf zwei speziell errichteten Testfeldern wird die mikrobielle Methanoxidation hinsichtlich ihrer Leistung und Anwendbarkeit im Schwachgasbereich untersucht. Auf der gemeinsamen Basis eines Kapillarsperrensystems und einem aufgelagerten mineralischen Boden wurde zum Einen ein am Standort gewachsene humusreicher Oberboden und zum Anderen eine Anmischung aus einem tonig-lehmigen Unterboden und Kompost (3:1 Vol.-%) aufgebracht. Die momentan laufende Messkampagne dokumentiert die Temperatur und Feuchtigkeit in den verschiedenen Bodenhorizonten sowie die bodenphysikalischen und chemischen Parameter zur Charakterisierung der Methanoxidationsprozesse. Unterirdische Gashauben, Gasprofile und Oberflächenemissionsmessungen werden herangezogen, um die Methankonzentrationen sowie Methanflüsse zu bilanzieren und daraus die mikrobiellen Abbauraten zu bestimmen.

Keywords

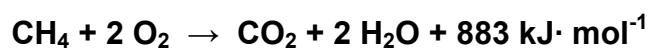
Methan Oxidation, Feldstudie, Mechanisch-Biologische Abfallbehandlung, Emission
Methane Oxidation, field study, mechanically-biologically treated waste, emission

1 Hintergrund

Abfalldeponien sind aufgrund von biochemischen Abbauvorgängen organischer Inhaltsstoffe Orte einer beachtlichen Gasproduktion und –emission. Das dabei entstehende Deponiegas setzt sich in der stabilen Methanphase im Wesentlichen aus 60 Vol.% CH₄ und 40 Vol.% CO₂ zusammen, was einem Verhältnis von 1,5:1 entspricht (RETTENBERGER, 1991). Mit zunehmendem Abbau der organischen Abfallbestandteile verschiebt sich dieses Verhältnis auf Werte deutlich größer als 2:1. Methan als Hauptbestandteil von Deponiegas stellt neben seiner Explosivität auch als Treibhausgas ein großes Gefahrenpotential dar. Damit gehören Deponien weltweit, gemeinsam mit der Energieerzeugung, der Viehzucht und dem Reisanbau, zu den größten vom Menschen verursachten Methanquellen (WANG, 2000). Die Deponiegasmenge, welche dabei allein in Deutschland entsteht, kann mit etwa 2,5 Milliarden Nm³ pro Jahr abgeschätzt werden. Weiterhin trägt Methan nach Kohlendioxid am zweitstärksten zum anthropogenen Treibhauseffekt bei, denn die Klimawirkung von Methan ist ca. 25 Mal so stark wie die von Kohlendioxid (FORSTER, 2007 [IPCC]). Auf

Abfalldeponien werden zur Vermeidung gasförmiger Emissionen im Allgemeinen spezielle Oberflächenabdichtungen in Kombination mit aktiven oder passiven Gasfassungssystemen eingebracht, die es erlauben, das deponiebürtige Gas zu fassen, zu behandeln und ggf. zu nutzen. Dennoch ist die Restgaspotenzial bei der Deponierung von MBA mit 20-40 l/kg TS und damit die in die Atmosphäre entweichende Methanmenge nicht unerheblich (SOYEZ, 2000).

Methanoxidierende Bakterien (MOB), welche ein ubiquitäres Vorkommen haben, sind unter geeigneten Bedingungen in der Lage, das entstehende Methan nach der folgenden Reaktionsgleichung zu nutzen:



Deponieoberflächenabdichtungen können daher wie ein Flächenfilter wirken, wodurch der Ausstoß von Methan und Geruchsstoffen potenziell vermindert werden kann (MANCINELLI, 1995). Die mikrobielle Methanoxidation stellt damit eine wirksame und kostengünstige Möglichkeit dar, um nachhaltig Methanemissionen aus Deponien zu verringern (Humer und Lechner 2001). Weitere Anwendungsgebiete für die mikrobielle Methanoxidation sind bei Monodeponien für reaktionsschwache Abfälle, Deponien in der Anfangsablagerungsphase sowie in der Nachsorgephase zu finden.

Basierend auf diesen Hintergründen verfolgt das MiMethox-Projekt drei übergeordnete Ziele:

- Entwicklung optimierter Rekultivierungsschichten zur wirksamen Verringerung von Methanemissionen aus Deponien
- Entwicklung und Validierung einer Methode zur Bilanzierung des Methanhaushalts ganzer Deponien
- Bereitstellung der Ergebnisse für die Praxis in Form von zwei technischen Leitfäden.

2 Prozessstudie auf einer MBA-Deponie

2.1 Planung und Bau der Testfelder auf der MBA-Deponie Singhofen, Rhein-Lahn-Kreis

Auf der Siedlungsmülldeponie des Abfallwirtschaftszentrums Rhein-Lahn Kreis wurden im Aug./Sept. 2007 auf einem Abfallkörper aus mechanisch-biologisch aufbereiteten Abfällen ein Testfeld mit den Abmessungen 20 m x 30 m (B x L) mit einem Abdecksystem aus einer Kapillarsperre mit aufliegender Rekultivierungsschicht hergestellt (Abbildung 1 und Bild 1). Aufgabe der Kapillarsperre ist hauptsächlich die

Minimierung der Wassereinsickerung in den Deponiekörper, sie verbessert aber auch die flächige Verteilung des von unten aus dem Abfallkörper anströmenden Deponiegases. Die Testfelder wurden mit einer Hangneigung von 1:7 in südwestlicher Richtung profiliert, um das Abfließen von eingedrunenem Niederschlagswasser in das eingebaute Drainagesystem zu gewährleisten.

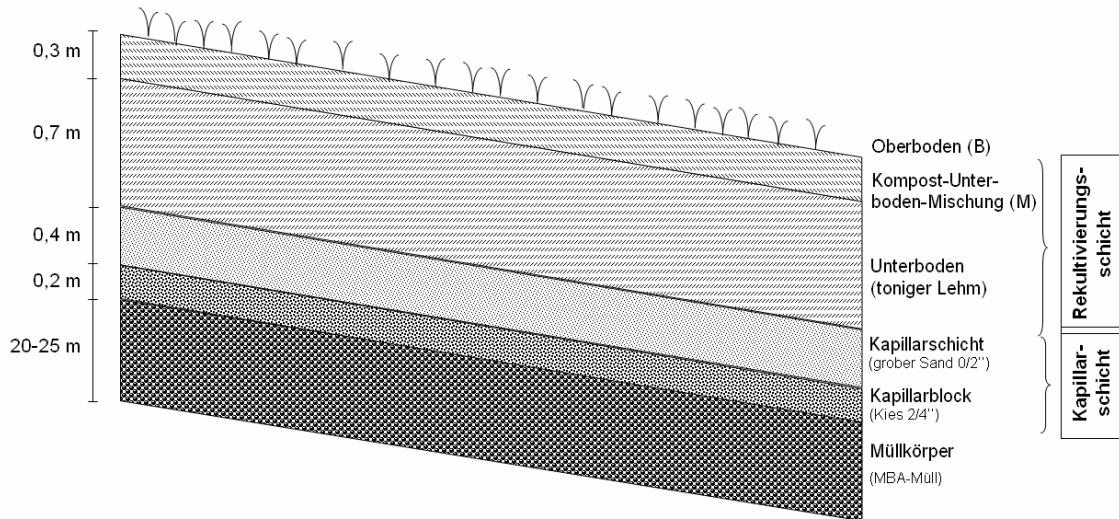


Abbildung 1 Schematischer Aufbau der Oberflächenabdichtung

Biologische Stabilität und Nährstoffgehalt sind wesentliche Parameter für die Eignung als Besiedlungssubstrat für die Methanoxidanten (HUBER-HUMER 2004). Um verschiedene Böden hinsichtlich ihrer Eignung zu überprüfen, wurde das Testfeld in zwei Bereiche unterteilt, in denen unterschiedliche Oberböden über einem einheitlichen mineralischen Unterboden eingebaut wurden:

- Als Unterboden wurde ein am Standort gewachsener mineralischer Unterboden verwendet (lockerer Einbau mit einem Verdichtungsgrad von 71 % D_{Pr} und einer Einbaudicke von 0,9 m inklusive 0,2 m Sackungsreserve, Bodenart nach DIN 4220 toniger Lehm Ut3 bis Ut4, Bodenart nach DIN 4022 U, t, s', Porenvolumen 52 %, Luftkapazität 19 %, nutzbare Feldkapazität 9 mm/dm, TOC: 0,07 mg/g TS, NH_4^+ : $8,4 \times 10^{-3}$ mg/g TS, pH: 4,7, WHK_{max} 47 %).
- Die Testfeldvariante B schließt auf dem Unterboden mit einer 30 cm dicken Schicht eines humusreichen vor Ort gewachsenen Oberbodens ab (Bodenart schluffiger Lehm Lu bzw. U, t, s, g', Verdichtungsgrad 69,5 % D_{Pr} , Porenvolumen 51 %, Luftkapazität 20 %, nutzbare Feldkapazität 17 mm/dm, TOC: 0,13 mg/g TS, NH_4^+ : $6,5 \times 10^{-3}$ mg/g TS, pH: 6,3, WHK_{max} 55 %).
- Der zweite Testfeldbereich M wurde mit einer Kompost-Unterboden Mischung im Volumenverhältnis 1 : 3 aus reifem Grünschnittkompost und dem mineralischem Unterboden versehen (Bodenart schluffiger Lehm Lu bzw. U, t, s, g',

Verdichtungsgrad 58,8 % D_{Pr} , Porenvolumen 60 %, Luftkapazität 30 %, nutzbare Feldkapazität 10 mm/dm, TOC: 0,17 mg/g TS, NH_4^+ : $10,0 \times 10^{-3}$ mg/g TS, pH: 6,8, WHK_{max} 54 %).



Bild 1 Testfeld mit installierten Messgeräten; linke Hälfte: „Oberboden“-Variante (Bereich B), rechte Hälfte: „Kompost-Unterboden Mischungs“-Variante (Bereich M)

2.2 Messkampagne

Die seit Januar 2008 laufende Messkampagne erstreckt sich über 24 Monate, um die realen Klima- und Atmosphärendruckschwankungen von mindestens zwei ganzen Jahresgängen abzudecken.

Zum Monitoring von Gasflüssen und -mengen, in Abhängigkeit von Temperatur, Bodenfeuchte und Witterung wurde ein umfangreiches Messequipment auf den beiden Testfeldern installiert (Abbildung 2).

Vegetationsaufwuchs, Setzungserscheinungen und Witterungseinflüsse rufen in der Rekultivierungsschicht Veränderungen der bodenphysikalischen und chemischen Eigenschaften hervor. Die Bodenentwicklung wird daher während der Messkampagne durch regelmäßige Beprobung (Nährstoffgehalt, pH-Wert, Leitfähigkeit) beobachtet und durch ergänzende Laboruntersuchungen (Porengrößenverteilung, Gaspermeabilität, biologische Aktivität) beschrieben.

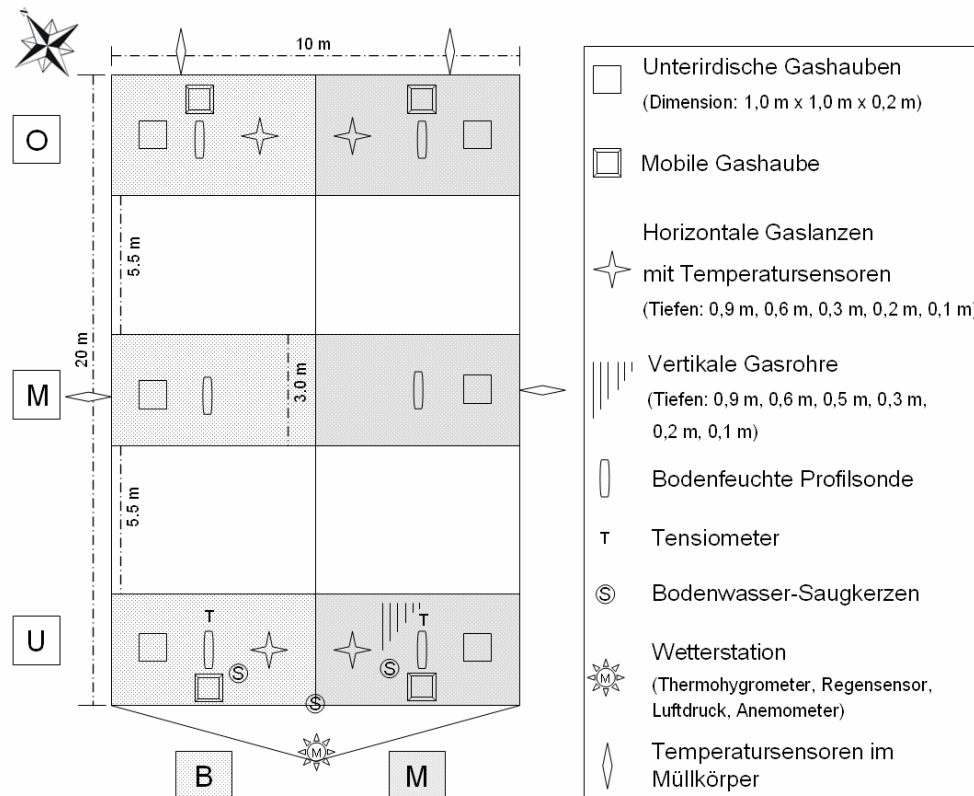


Abbildung 2 Installiertes Messequipment auf den Testfeldern; B=Oberboden, M=Kompost-Unterboden Mischung; Unterteilung der Testfelder entsprechend der Hangneigung in O=Oben, M=Mitte, U=Unten

3 Erste Ergebnisse der Messkampagne

3.1 Bodenwassergehalt

Der Wassergehalt spielt bei der Methanoxidation eine entscheidende Rolle, da es als Transportmedium für Nährstoffe zu den methanotrophen Bakterien dient und die Verfügbarkeit von Methan und Sauerstoff im Boden beeinflusst. In der Literatur werden unterschiedliche Angaben hinsichtlich der optimalen Bodenfeuchte für die Methanoxidation gegeben. So bezeichnet GEBERT (2004) einen Wassergehalt von ca. 26 Vol.-% in einem Temperaturbereich zwischen 8 und 25 °C als Optimum für die Methanabbauraten. Unter Extrembedingungen (sehr trocken bzw. sehr feucht) ist die Bodenfeuchte der limitierende Faktor für die Methanoxidation, wobei in einem optimalen Feuchtbereich die Temperatur den dominanten Einfluss hat.

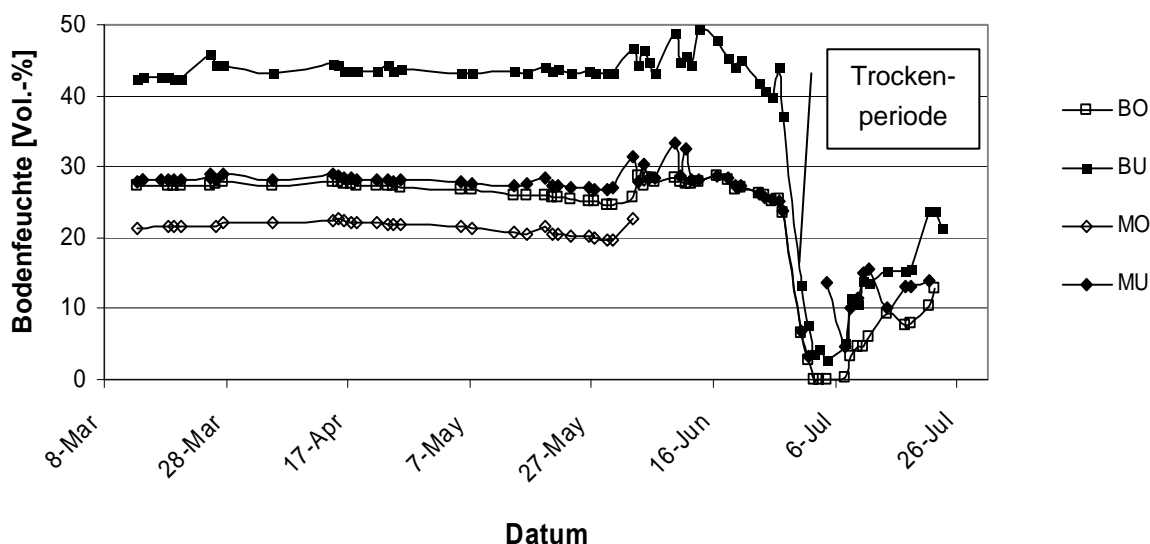
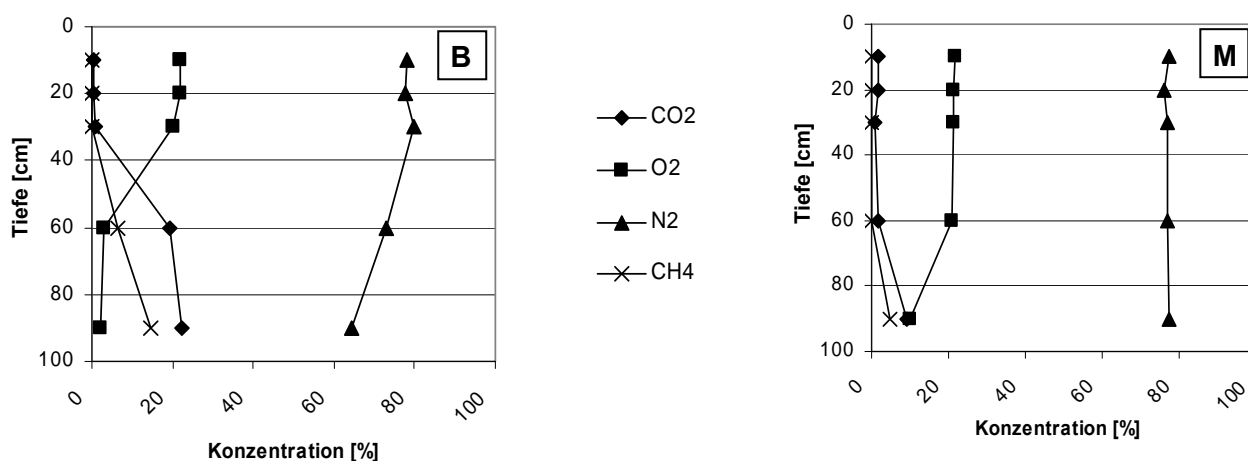


Abbildung 3 Bodenfeuchte [Vol.-%] im Methanoxidationshorizont (90 cm) der beiden Testfeldvarianten B und M sowie unterschiedlichen Hangbereichen (U=Unten, O=Oben)

Bodenhydrologische Messtechnik in Verbindung mit meteorologischen Aufzeichnungen werden herangezogen um den Wasserhaushalt der Oberflächenabdeckschicht zu charakterisieren. Abbildung 3 zeigt den Bodenwassergehalt auf den beiden Testfeldvarianten jeweils an der Hangsohle und –spitze. Betrachtet wird hier die Bodenfeuchte in einer Tiefe von 90 cm, da aufgrund von Gasprofilmessungen (s. 3.3) und Aktivitätsuntersuchungen an Bodenproben (s. 3.4) in diesem Horizont die höchste Methanoxidationsrate zu erwarten ist. Mit einer volumetrischen Bodenfeuchte von 20-30 Vol.-% ist dieser Bodenbereich in den überwiegenden Bereichen des Testfeldes relativ trocken. Zu erkennen ist ein deutlich höherer Wassergehalt im unteren Testfeldbereich BU, was mit Abfließen von Niederschlagswasser und der stärkeren Akkumulation an der Hangsohle zu erklären ist. Der negative Einfluss hoher Bodenfeuchtigkeit auf die Gasdiffusion und damit auf die Methanoxidation ist in den Abbildungen 6 und 7 deutlich zu erkennen.

3.2 Methan

Die Gaszusammensetzung im Profil der Testfeld-Rekultivierungsschichten unterliegt einer räumlichen und zeitlichen Dynamik. Sie bestimmt einerseits die Größenordnung der aus dem Müllkörper konvektiv und diffusiv entweichenden Gasfracht und stellt andererseits die zum jeweiligen Zeitpunkt herrschenden Bedingungen für die Methanoxidation dar.



Abbildungen 4 und 5 Gasprofile (CO₂, O₂, N₂, CH₄) der beiden Testfeldvarianten „Oberboden“ (B) und „Kompost-Boden Gemisch“ (M)

Die Abbildungen 4 und 5 zeigen die Konzentration [Vol.-%] der Gase Kohlenstoffdioxid, Sauerstoff, Stickstoff und Methan in den Bodenprofilen der beiden Testfeldvarianten. In beiden Testfeldbereichen deutet die hohe Stickstoffkonzentration bis in eine Tiefe von 90 cm auf eine sehr gute Bodendurchlüftung aufgrund der lockeren Bodenschüttung hin. Sauerstoff liegt bis zur Basis der Oberflächenabdichtung in ausreichender Menge vor. In beiden Testfeldvarianten (B und M) wird das von unten anströmende Methan sehr schnell, d.h. in einem tiefen Bodenhorizont von 90 cm abgebaut. Die Abnahme der Sauerstoffkonzentration zwischen 60 cm und 90 cm Tiefe ist auf die dort stattfindenden Methanoxidationsprozesse zurück zu führen. In den obersten 30 cm (Messstelle B) bzw. 60 cm (Messstelle M) der Abdeckung ist in beiden Testfeldvarianten kein Methan gaschromatographisch zu detektieren, was auf dessen vollständigen Abbau hinweist, aber noch durch weitere Untersuchungen quantifiziert werden muss. Generell zeigen die Gasprofile, dass das Methangasaufkommen aus dem MBA-Müll sehr gering ist (B: 18 Vol.-%, M: 8 Vol.-%), aufgrund des sehr hohen Verrottungsgrades des Materials.

Die Höhen der auftretenden Methankonzentrationen unterliegen räumlichen, zeitlichen und umgebungsbedingten Unterschieden. Um die Produktion des Deponiegases im Müllkörper quantifizieren und qualifizieren zu können, wurden unterirdische Gashauben in den Kapillarblock des Oberflächenabdichtungssystems integriert. Große Differenzen treten aufgrund von saisonalen und witterungsabhängigen Umwelteinflüssen auf. Im feuchten Frühjahr staut sich durch die wassergefüllten Bodenporen das Methan in der Oberflächenabdichtung und Sauerstoff wird umgekehrt das Eindringen in den Boden erschwert (Abbildung 6). Trockene und warme Witterungsphasen erleichtern die Gasdiffusion und unterstützen die Methanoxidation (Abbildung 7).

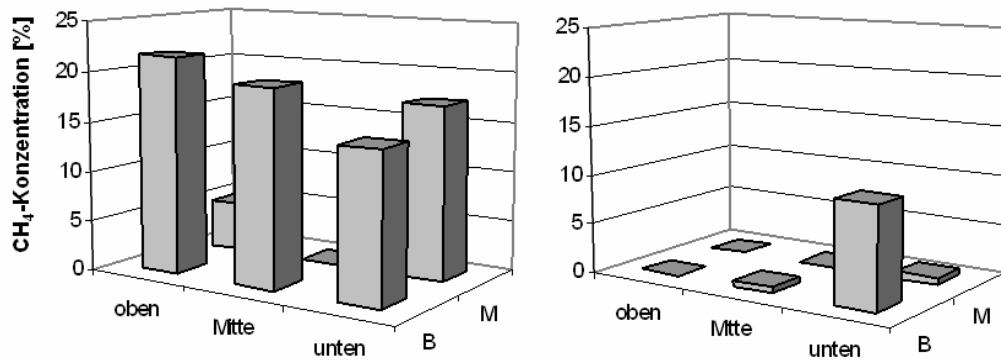


Abbildung 6 und 7 CH₄-Konzentrationen in den unterirdischen Hauben; links: feuchtes und kaltes Frühling 2008, rechts: Trockenphase im Sommer 2008

3.3 Aktivität methanoxidierender Bakterien

In Batch-Versuchen werden gestörte Bodenproben hinsichtlich ihrer Methanoxidationsaktivität untersucht. Die aus verschiedenen Profiltiefen (0-90 cm) im Freiland gewonnenen Bodenproben werden unter Laborbedingungen (50 g TS, 20 °C, WHK_{max} 60%) in Septumflaschen unter einer Luft-Methan-Atmosphäre (8 Vol.-%) im Dunkeln kultiviert. Die Veränderung der Gaszusammensetzung in den Versuchsbehältern wird über die Zeit durch regelmäßige gaschromatographische (WLD / FID) Analysen des Kopfgasraumes verfolgt (CZEPIEL ET AL., 1996). Bei Anwendung einer standardisierten Versuchsdurchführung lässt sich so die Aktivitätstendenz der methanoxidierenden Bakterien beurteilen.

In Abbildung 8 ist die CH₄-Abbaurrate einer Batch-Serie dargestellt. Man sieht, dass der Methanabbau in der Kompost-Unterboden Mischung (MO), welche die obersten 30 cm dieser Testfeldvariante bildet, deutlich schneller in Gang kommt und auch insgesamt die höchste Abbaurrate aufweist. Hier zeigt sich, dass die Nährstoffverfügbarkeit durch den Kompost, also die Verfügbaren von C- und N-Quellen, für die Methanoxidation von großer Bedeutung ist. Nach einer Lag-Zeit von ca. 40 Tagen steigt auch die Methanoxidationsrate in den Bodenproben aus den Tiefen 60-90 cm an. In diesem Bodenprofil hatten das Material und die darin enthaltenen methanotrophen Bakterien im Testfeld Kontakt mit einer deutlich höheren Methankonzentration, als die darüber liegenden Bodenbereiche (s. Abbildung 4 und 5). Wo das Ausgangssubstrat Methan und Sauerstoff in ausreichender Höhe zur Verfügung steht, können sich die Bakterienpopulationen sowohl zahlreicher entwickeln als auch physiologisch besser adaptieren als in denjenigen Bodenbereichen, in welche nur noch Spuren von Methan vorkommen.

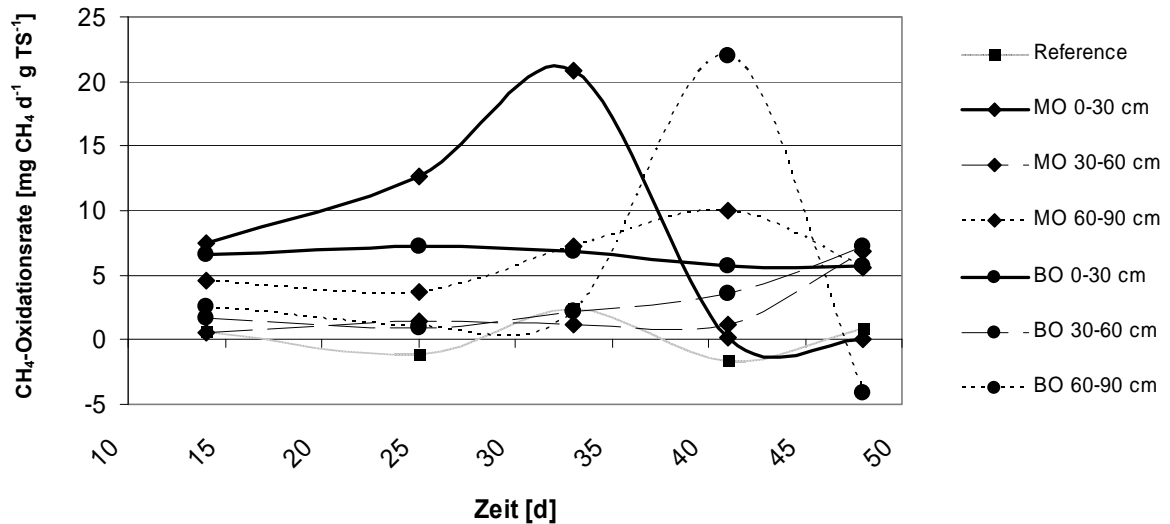


Abbildung 8 Methanoxidationsaktivität im Bodenprofil der Oberflächenabdichtung.
(M=Kompost-Unterboden Mischung; B=Oberboden; Profiltiefen von 0-90 cm)

4 Projektpartner

Die Arbeitspakete des MiMethox-Projektes werden von den folgenden vier Verbundpartnern in enger Kooperation bearbeitet:

- Universität Hamburg, Institut für Bodenkunde (Koordination)
- Technische Universität Hamburg-Harburg, Institut für Umwelttechnik und Energiewirtschaft, Gruppe Biokonversion und Emissionsminderung
- Technische Universität Darmstadt, Fachgebiet Abfalltechnik
- melchior + wittpohl Ingenieurgesellschaft, Hamburg

5 Danksagung

Das Forschungsvorhaben MiMethox wird im Rahmen der Fördermaßnahme *klimazwei* durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung gefördert. Das Abfallwirtschaftszentrum (AWZ) Rhein-Lahn Kreis unterstützt das Forschungsprojekt großzügig durch die Bereitstellung der Testfeld-Fläche, die notwendigen baulichen Maßnahmen sowie bei der Durchführung der Messkampagne.

Weitere Informationen sowie Kontaktadressen sind zu finden unter www.mimethox.de.

6 Literatur

- AbfAbIV 2001 Verordnung über die umweltverträgliche Ablagerung von Siedlungsabfällen (Abfallablagerungsverordnung - AbfAbIV). Bundesgesetzblatt I, S. 305.
- Czepiel, P. M., Mosher, B., Crill, P. M., Harriss, R. C. 1996 Quantifying the effect of oxidation on landfill gas emissions. *Journal of Geophysical Research – Atmospheres* 101 (D11), S.16721-16729.
- Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D.W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D.C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz and R. Van Dorland 2007 Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Geber, J. 2004 Mikrobielle Methanoxidation im Biofilter zur Behandlung von Rest-Emissionen bei der passiven Deponieentgasung. Dissertation. *Hamburger Bodenkundliche Arbeiten, Band 55*. Hamburg.
- Huber-Humer, M. 2004 International research into landfill gas emissions and mitigation strategies - IWWG working group "CLEAR". *Waste Management* 24, S. 425-427.
- Rettenberger, G. 1991 Die Bedeutung der Methan-, Kohlendioxid- und HKW-Emissionen von Deponien für die Atmosphäre. In: Rettenberger/Stegmann (Hrsg.): *Deponiegasnutzung. Trierer Berichte zur Abfallwirtschaft Bd. 2*. Economica Verlag, Bonn, S. 9-26.
- Soyez, K. et al. 2000 Verbundvorhaben „Mechanisch-biologische Behandlung von zu deponierenden Abfällen“. Gesamtdarstellung der wissenschaftlichen Ergebnisse des Verbundvorhabens. Hrsg.: K. Soyez. Universität Potsdam FKZ 1470960. Erich Schmidt. Berlin.
- Wang, B., Adachi, K. 2000 Difference among rice cultivars in root exudation, methane oxidation and populations of methanogenic and methanotrophic bacteria in relation to methane emission. *Nutrient Cycling in Agroecosystems* 58, S. 349-356.

Anschrift des Verfassers:

Dipl.-Biol. Sonja Bohn

Technische Universität Darmstadt, Fachgebiet Abfalltechnik

Institut WAR (Institut für Wasserversorgung und Grundwasserschutz,
Abwassertechnik, Abfalltechnik, Industrielle Stoffkreisläufe,
Umwelt- und Raumplanung)

Petersenstr. 13

D-64287 Darmstadt

Telefon +49 61 51 16 49 01

Email: s.bohn@iwar.tu-darmstadt.de

Website: www.iwar.bauing.tu-darmstadt.de